

Chemically sensitive transducer

Patent number: JP3502135T

Publication date: 1991-05-16

Inventor:

Applicant:

Classification:

- international: G01N27/00

- european: G01N27/414

Application number: JP19890508448T 19890809

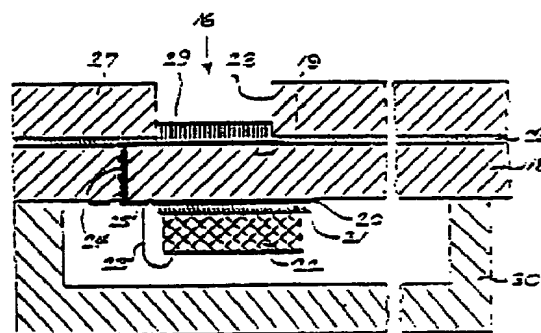
Priority number(s): DE19883827314 19880811; WO1989DE00525
19890809

Also published as:

WO9001694 (A)
EP0382831 (A1)
US5039390 (A1)
EP0382831 (B1)
DE3827314 (C1)

Report a data error he

Abstract not available for JP3502135T
Abstract of corresponding document: **US5039390**
PCT No. PCT/DE89/00525 Sec. 371 Date May 4, 1990 Sec. 102(e) Date May 4, 1990 PCT Filed Aug. 9, 1989 PCT Pub. No. WO90/01694 PCT Pub. Date Feb. 22, 1990. A chemically sensitive transducer for selectively determining a chemical property of a fluid and providing a measurement signal to an amplifying circuit. The transducer has a measuring electrode coupled to the amplifying circuit and provides a measurement signal to the amplifying circuit. A membrane covers the measuring electrode, this membrane being sensitive to a specified chemical property. A carrier plate, with first and second sides, has the measuring electrode arranged on its first side and the amplifying circuit on its second side. The carrier plate has a conductor extending between the first and second sides which electrically couples the measuring electrode and the amplifying circuit.



Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

⑫ 公表特許公報(A)

平3-502135

⑬ 公表 平成3年(1991)5月16日

⑭ Int. Cl.⁵
G 01 N 27/00

識別記号
J

庁内整理番号
6843-2C

審査請求 未請求
予備審査請求 未請求

部門(区分) 6(1)

(全 7 頁)

⑮ 発明の名称 化学感応性変換器

⑯ 特 願 平1-508448

⑰ 出 願 平1(1989)8月9日

⑱ 翻訳文提出日 平2(1990)3月16日

⑲ 国際出願 PCT/DE89/00525

⑳ 国際公開番号 WO90/01694

㉑ 国際公開日 平2(1990)2月22日

優先権主張 ㉒ 1988年8月11日 ㉓ 西ドイツ(DE) ㉔ P3827314.4

⑳ 発 明 者 ハンブ ノルベルト ドイツ連邦共和国 8000 ミュンヘン 40 ウンゲレーアシュトラ
ーセ 43

㉑ 出 願 人 ハンブ ノルベルト ドイツ連邦共和国 8000 ミュンヘン 40 ウンゲレーアシュトラ
ーセ 43

㉒ 出 願 人 ブロイヒル クリストフ ドイツ連邦共和国 8000 ミュンヘン 83 ロートケツプヘンシュ
トラーセ 89アー

㉓ 代 理 人 弁理士 三 澤 正 義

㉔ 指 定 国 AT(広域特許), BE(広域特許), CH(広域特許), DE(広域特許), FR(広域特許), GB(広域特許), IT
(広域特許), JP, LU(広域特許), NL(広域特許), SE(広域特許), US

最終頁に続く

請求の範囲

1. 流体(11)の1つの化学的性質を選択定量する化学感応性変換器(10)であって、この化学的性質に感応する隔膜(29)で覆われた付属の測定電極(19)にそのゲートが接続してある少なくとも1個の電界効果トランジスタと、隔膜(単・複)(29)を除き変換器(10)全体を流体(11)から隔離するカプセル(30)とを備えたものにおいて、片面に測定電極(19)、反対面に電界効果トランジスタを含む増幅回路(22)を配置した支持板(18)が設けてあり、測定電極(1)が支持板(18)に挿通した導体(24)を介し電界効果トランジスタのゲートと電気的に接続してあることを特徴とする変換器。

2. 支持板(18)が絶縁材料からなることを特徴とする請求の範囲1記載の変換器。

3. 支持板がSiO₂、Al₂O₃等の磁器材料、ガラス、エポキシ樹脂又は合成樹脂材料からなることを特徴とする請求の範囲2記載の変換器。

4. 増幅回路(22)と支持板(18)との間に導体膜(20)が測定電極(19)に向き合わせて配置してあることを特徴とする請求の範囲2又は3記載の変換器。

5. 測定電極(19)と電界効果トランジスタとを電気的に接続(24)するため支持板(18)に直径0.1mm未満の穴が穿設してあり、少なくとも穴の壁が導電性材料で被覆してあることを特徴とする請求の

範囲1乃至4のいずれか1項記載の変換器。

6. 測定電極(19)、支持板(18)に挿通した導体(24)及び場合によっては導体膜(20)が流体に対し化学的に不活性な材料からなることを特徴とする請求の範囲1乃至5のいずれか1項記載の変換器。

7. 前記材料が金、白金、銀、銅、パラジウム又はそれらの合金、又は導電性高分子であることを特徴とする請求の範囲6記載の変換器。

8. 支持板(18)に被覆したマスク板で測定電極(19)の面を制限したことを特徴とする請求の範囲1乃至7のいずれか1項記載の変換器。

9. マスク板(27)が穴を覆うことを特徴とする請求の範囲5に合わせて請求の範囲8記載の変換器。

10. マスク板(27)と支持板(18)との間に穴を覆う絶縁体膜が配置してあることを特徴とする請求の範囲9記載の変換器。

11. 絶縁体膜がSiO₂、ポリイミド、エポキシ樹脂、アルミナ又はシリコーン樹脂からなることを特徴とする請求の範囲10記載の変換器。

12. マスク板(27)が取外し可能であることを特徴とする請求の範囲1乃至11のいずれか1項記載の変換器。

13. 隔膜(29)が(電気)化学反応により又は溶解した形で被覆可能であることを特徴とする請求の範囲1乃至12のいずれか1項記載の変換器。

14. 支持板(18)、マスク板(27)、そして増幅回路(22)をカプセル封入するカバー(30)

が同じ絶縁材料からなることを特徴とする請求の範囲1乃至13のいずれか1項記載の変換器。

15. 増幅回路(22)を取り囲み支持板(18)とカバー(30)とにより囲繞された空間に不活性ガスを圧縮充填したことを特徴とする請求の範囲1乃至14のいずれか1項記載の変換器。

16. それが活性測定電極と不活性電極とを備えた差動センサ対を少なくとも1つ有することを特徴とする請求の範囲1乃至15のいずれか1項記載の変換器。

発明の名称

化学感応性変換器

技術分野

本発明は、流体の1つの化学的性質を選択定量する化学感応性変換器であって、この化学的性質に感応する隔膜で覆われた付属の測定電極にそのゲートが接続してある少なくとも1個の電界効果トランジスタと、隔膜を除き変換器全体を流体から隔離するカプセルとを備えたものに関する。

「化学感応性」とは、イオン又は気体感応性、酵素基質、抗体/抗原又は水素化可能なDNA/RNA群に対する感度のことである。その感度に応じてかかる変換器は医学において例えば血液の分析に、臨床化学において治療制御、ホルモン定量、感染診断、腫瘍診断に、更に発酵制御、食品分析、環境分析において、そしてプロセス制御にも利用することができる。

先行技術

請求の範囲1の序文に記載した特徴を有する化学感応性変換器がEP-B-0 065 350により知られている。そこでは半導体基板内に電界効果トランジスタが形成してあり、そのゲートは横に続いた導体を介し同じ基板面に配置された測定電極と接続してある。測定電極には測定すべき化学的性質に感応する隔膜又は被膜が電界めっき、スパッタリング又は真空蒸着により被着して設けてある。電界効果トランジスタはエポキシ樹脂又はシリコンゴムからなる保護膜に

よって被検流体から隔離してある。

このように構成した変換器の感応性隔膜を被検流体に浸漬すると隔膜の電気的活性物質と流体との間のイオン交換反応により電界効果トランジスタのゲート電極に電位が発生し、これがそのチャネルコンダクタンスに影響する。電位差式又は電流式測定により、被測定パラメータの濃度に比例した適宜な出力信号を得ることができる。

別の化学感応性変換器が、EP-A-0 302 228、EP-B-0 078 590又はUS-P 54 514 276により知られている。

前記イオン交換反応により惹き起こされた電圧はmV範囲のものではあるが隔膜の抵抗性負荷容量はpA乃至fA範囲にある。このように少ない電荷量で動作する場合肝要なのは外乱を全て、特に電氣的又は熱的外乱を遠ざけることであり、この点についての措置を前記刊行物は何ら記載していない。周知変換器の別の難点としてそれらは前記方法により測定電極に被着することのできる隔膜が感応する化学的性質の検出にのみ利用することができる。

発明の説明

本発明の課題は、周知の化学感応性変換器に比べ感度が高く又同時に電氣的影響にも温度変化にも強い化学感応性変換器を提供することであり、その際これは安定性の劣る隔膜物質でのみ検出できるような性質に対しても感応するよう構成できなければならない。

この課題の本発明による解決法が請求の範囲1に明

示してある。

本発明によれば片面に測定電極、反対面に電界効果トランジスタを含む増幅回路を配置した支持板が設けてあり、更に測定電極は支持板に導通した導体を介し電界効果トランジスタのゲートと電氣的に接続してある。

支持板に貫通接続を設け、支持板の反対面に測定電極と増幅回路を配置すると変換器全体の寸法が小さくなり、又測定電極面の寸法及び数の点で自由に設計可能となり各測定電極と付属の増幅回路との間の距離がごく短くなりSN比が適宜に高くなる。従って本発明による変換器は従来の変換器より感度が高い。更に、本発明により構成することで測定電極(単・複)の構成を殆ど自由に選択することができ、従って各種測定問題への適合が可能となる。特に、従来のイオン感応性電極において使用されている全ての隔膜種を隔膜として使用することができる。

更に、増幅回路もさまざまな技術で構成することができ、例えば個数が少ない場合でも混成技術又は薄膜技術での変換器の構成を安価に実現することができる。

本発明の諸構成は従属請求の範囲に明示してある。

請求の範囲2によれば支持板が絶縁材料からなり、これは特にSiO₂、Al₂O₃等の絶縁材料、ガラス、エポキシ樹脂又は合成樹脂材料とすることができる(請求の範囲3)。従って支持板は僅かな厚さで所要の安定性を付与するだけでなく増幅回路(単・複)を環境の影響から確実に遮蔽する。Al₂O₃、絶縁等

の磁器材料は例えば測定電極材料、導体膜材料及びその他の導体材料を厚膜技術で被着するのに適している。

請求の範囲4では、増幅回路と支持板との間に導体膜が測定電極に向き合わせて配置してあり、これに測定電極と同じ電位を印加することができる。この措置で高インピーダンス入力信号が妨害電界から積極的に遮蔽され、これにより、S/N比が一層低下し、変換器の感度限界が低下し又はその応答速度が高まり、変換器が複数のチャンネルを有する場合漏話挙動が向上する。請求の範囲4の配置は更に入力容量が事実上完全に除去されることを意味する。

請求の範囲5によれば測定電極と電界効果トランジスタとを電気的に接続するため支持板に直径0.1mm未満の穴が穿設してあり、少なくとも穴の壁が導体材料で被覆してある。本発明のこの改良の利点として、穴の断面が小さいので静止液体又は僅かに動く液体はその界面張力により、穴の外面を露出させる場合でも増幅回路に達することができない。

請求の範囲6によれば測定電極、支持板に押通した導体及び場合によっては導体膜が流体に対し化学的に不活性な材料からなり、従って流体と反応することがなく又特に隔膜を被着するのに事実上任意の補助物質(溶剤、還元剤、酸化剤、カップリング及び重合用ラジカル)を使用することができる。こうした材料には例えば金、白金、銀、パラジウム又はそれらの合金、又は例えばポリピロール等の導電性高分子がある。

と、増幅回路をカプセル封入するカバーも支持板の材料から製造してあると、熱膨脹率が異なる場合温度変化によって漏れを生じ得るような機械的応力が避けられる。更に、特に磁器は良好な電気絶縁体を形成し化学的に不活性であり、つまりそれは被検流体と反応せず、生化学的に中性である。

請求の範囲15により設けてあるように変換器ハウジングに不活性ガスを超圧充填することは水蒸気の侵入から増幅回路を保護する措置であり、例えば温度安定性センサを使って実施可能なオートクレープ処理のとき電子部品の酸化を防止する。

変換器が活性測定電極と不活性電極とを備えた差動センサ対を少なくとも1つ有する請求の範囲16の構成では外部比較電極が不可欠ではなくなる。但し本発明による変換器ではこれをいつでも使用することができる。センサチャンネルはそれぞれ1つのセンサ対からなり、その電位は標準溶液接点を基準に決まり且つ相互に減算される。一方の電極面は希望する隔膜で被覆され、他方は同じ、但し「キャリアのない」混合物で被覆される。「キャリアのない」とはこの場合隔膜又は被覆が感応成分を持たないことである。この差形成により標準溶液接点の電位不安定さや、例えば脂肪酸和性血液脂質の拡散注入によって惹き起される隔膜の特有でないマトリックス効果が消える。

図面の簡単な説明

本発明の実施例を以下図面に基づき詳しく説明する。
第1図は化学感応性変換器の使用時を示す概要図、

請求の範囲8には、支持板に被着したマスク板で測定電極の面を制限しておくことができることが明示してある。本発明のこの改良は利点として隔膜を測定電極に被着するため特定の底面を有する槽状受容部が形成され、隔膜が適宜な広がりを持ち又その厚さは液体を単純に計量することで確定することができる。こうして、適用者自身が十分な精度で隔膜を被着する可能性も得られるが、このことは敏感で安定性の劣る酵素、抗体等の生物学的物質を用いる場合必要となる。更に、使用済み隔膜を取り除き、新しい隔膜を被着して変換器を再利用することも可能となる。適用者自身が被着することのできる隔膜が請求の範囲13に明示してあり、これによれば、隔膜は(電気)化学反応により又は溶解した形で被着することができる。更に請求の範囲12によればマスク板を取外し可能又は交換可能に配置することも可能となる。

それと共に、隔膜を変換器に被着するためにのみマスク板を配置し、又は各種構成のマスク板を被着することで隔膜面を変更することが可能である。

マスク板で穴を覆う請求の範囲9の措置はカプセル内に設けた増幅回路を一層保護する上で望ましい。

請求の範囲10によりマスク板と支持板との間に設けた穴を覆う絶縁体膜も貫通接続を一層密封するのに役立つ。この絶縁体膜は請求の範囲11によれば、主にSiO₂、ポリイミド、エポキシ樹脂、アルミナ又はシリコン樹脂から構成することができる。

請求の範囲14の構成に設けてあるようにマスク板

第2図は第1図に示す変換器の要部横断面図、

第3図は第2図に示した支持板の増幅回路担持面の平面図、

第4図、第5図は電位差式又は電流式に信号を収集する電気回路の例、

第6図は本発明による変換器の特性曲線を示す。

好ましい実施例の説明

第1図に示した配置において化学感応性変換器10が被検流体11に浸漬され、外部給電線を介し電圧源12と表示装置13とに接続してあり、後者は実線記録計であってもよい。

変換器10は、第1図において観察者側の面に2つの差動センサ対14と1個の基準溶液接点15とを備えている。各差動センサ対14は1個の活性センサ16と1個の受動センサ17を含む。各差動センサ対14の活性センサと受動センサは基準溶液接点15を基準に対称に配置してある。

第2図の要部横断面図では活性センサ16の1個とそれに付属した電子素子が詳細に示してある。それによるとセンサ16はAl₂O₃磁器からなる支持板18の上面に被着した測定電極19を含み、それに向き合わせて支持板18の下面には導体膜20が被着してある。

導体膜20に、SiO₂絶縁膜21を介して増幅回路22が配置してあり、これは市販の集積回路でもよく、その例については第4図、第5図を基に後に簡単に説明する。

増幅回路22の入力電界効果トランジスタのゲートは素子23と直連接続した接続導体24とを介し測定電極19に接続してある。導体24は支持板18に穿設し又はレーザ光により製造した直径0.1mm未満の微細孔に通してある。測定電極19及び導体膜20を製造するため支持板18の該当する面範囲が金圧力ペーストで被覆してあり、このペーストは同時に微細孔にも充填される。圧力ペーストを焼成すると穴の壁に導電性金属が形成される。

第3図は導体膜20、それに被覆したSiO₂、絶縁膜21及びその上に被覆した素子増幅回路22の立体設計を示す。導体膜20の凹部内で微細孔に通した接続導体24が接続タブ25となって成端し、これにボンディング線23が固着してある。支持板18の上面にSiO₂、膜26を介してAl₂O₃、磁器からなるマスク板27が被覆してあり、これが測定電極19の範囲にセンサ穴28を有する。導体24を通した微細孔はこのセンサ穴28の外側にあり、それ故マスク板27で覆われ、付加的にSiO₂、膜26で密封される。センサ穴28の範囲で測定電極19に被覆してある隔膜29は検出すべき化学的性質に反応する物質を含んでいる。

第2図からわかるようにマスク板27に設けてあるセンサ穴28は支持板18上に設けた測定電極19と一緒に、底面の限定された槽状くぼみを形成する。それ故隔膜29は液体の形でごく簡単に被覆することができ、予め計量した液体量から所定の厚さの隔膜が得

られる。このように設計してある結果、隔膜29の被覆は適用者の判断に任せ、短命物質の場合重要なことであるが本来の使用直前に行うことができる。更にこの被覆法はスパッタリング又は真空蒸着等の従来の方法では被覆することのできない敏感な物質にとっても適している。磁器マスク板27を用いると更に使用済み隔膜を取り除いて新しいものに取り替えることができ、全体として変換器は繰り返し使用することができる。

受動センサ17は第2図で活性センサ16について述べた構造と基本的には差異がない。これも、活性センサ16の隔膜29の場合隔膜質量の約1%を構成する感応性成分に至るまで同一組成の隔膜を有する。

だが第1図に示した基準溶液接点15が、そこでは測定電極が隔膜なしに露出してあり、又独自の配線が設けていない限りで第2図に示した構造と相異している。変換器全体の基準電位を伝える基準溶液接点15は以下なお、説明するように各増幅回路22と接続してある。

第2図の構造では測定電極19及び導体膜20がその間にある磁器支持板18とでコンデンサを形成し、これが変換器の入力容量を小さくし、又、高インピーダンス入力信号(10¹⁵Ω程度)を模擬電界から遮蔽する。

第2図に更にカバー30が図示してあり、これは支持板18の下面に取り付けた増幅回路22を支持板18と一緒にカプセル封入する。カバー30も

Al₂O₃、磁器からなる。外部から水蒸気が侵入するのに対抗するためそして温度の影響で電子部品が融化するのを防ぐためカプセル空間には不活性ガスが圧縮充填されている。カバー30は第1図に示した変換器10の裏面全体に延設することができ、全てのセンサ16、17の電子素子を取り囲む。

変換器に2つ(又はそれ以上の)差動センサ対14を実装できることにより、活性センサ16の選択性物質を適切に選択すると流体11の2つ以上の化学的性質を同時に定量することができる。

第4図に示す電位差式信号収集回路では活性センサ16が第1演算増幅器段31の入力電界効果トランジスタに、そして受動センサ17が第2演算増幅器32の入力電界効果トランジスタに接続してある。この場合電極電位のインピーダンス変換のためごく高オームの一次段(R_{in} ~ 10¹⁵Ω, I_{in} ~ 150 fA)が用いられる。増幅器31、32の低インピーダンス出力信号が差動増幅器33の2つの入力端に加えられ、後者の出力信号が測定信号となる。基準溶液接点15は抵抗器34を介して差動増幅器33の受動センサ17の信号が加えられる入力端に接続してあり、トリム入力端35は別の演算増幅器36及び別の抵抗器37を介し差動増幅器33の活性センサ16の出力信号が印加される入力端に接続してある。基準溶液接点15は更に変換器のアナログ接地端子38と接続してある。電位差式動作の場合、導体膜20が一方の演算増幅器31又は32の出力端と接続され、インピーダンス

変換入力信号が遮蔽面に印加される。

第4図にその主要構成要素が図示してある回路は第2図で符号22とした集積構成した増幅回路の1例である。

第5図の回路は電流式に信号を収集するよう構成してあり、第4図と同じ符号は同一の回路素子を意味する。配線の違いは第4図と比較してわかる。

全体として上述の変換器は以下の有利な性質を有する。

(a) 従来の電極とは異なり上述の変換器は測定系及び隔膜表面を小型化することができ、大きさや形状が大幅に可変である。この変換器は僅かな製造、開発費を必要とするだけであり、各種の適用事例に合わせて設計することができる。センサの応答時間が短い。複数のセンサを実装することで複数のパラメータを同時に測定することができる。選択性を異にする隔膜を複数使用すると個々の差動センサ対の交差選択性を後続の電子素子で電子的に除去することが可能となる。信号収集が変換器内に一体化してあり、出力信号は別に処理する必要もなく表示に利用することができる。

(b) 従来の化学感応性電界効果トランジスタに比べ、前述の変換器はカプセル封入の故に耐久性の問題が生じない。各種の隔膜物質を容易に被覆することができ、バイオ選択性成分と組合せることで高い可変性が得られる。電極表面が可能な限り広いので被覆する隔膜物質の量をより正確に再現することができる。FETマルチセンサの場合に現れる並設問題が避けられる。

特表平3-502135 (5)

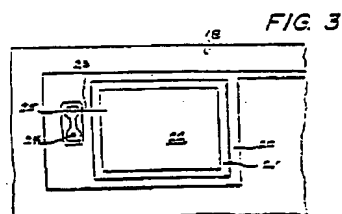
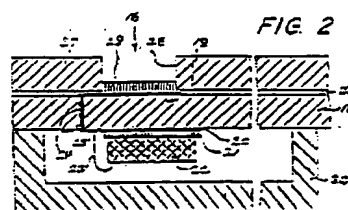
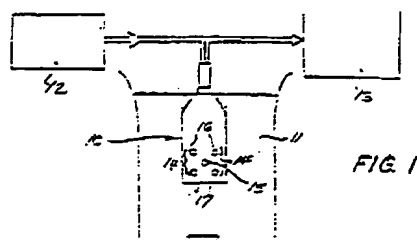
第6図が各種イオンについて本発明センサの特性曲線を示す。この場合一般的発明思想を制限することなく電極面はPVC液膜で感応化してある。これには文献から知られている隔膜混合物を使用することができる。差動検出にに合わせて各イオン種にキャリア含有隔膜もキャリアなしの隔膜膜も使用される。

電極面に隔膜を被覆するには以下の如く処理する。
CaCl₂を介しセンサを乾燥させた後、テトラヒドロフランに溶かしたPVC隔膜の2.1%溶液7μlを適宜な電極くぼみ内にピペットで移す。テトラヒドロフランの蒸発後、この処理を繰り返す。その後、電解質混合物内で隔膜の状態調節を行う。

電極マスクでセンサ領域の形状寸法が厳密に定義しており、単純な液体計量で再現可能な同一厚の隔膜を製造することができる。隔膜は電極面に接着によって固定するのでそれを再び引き剥がし、洗浄後センサモジュールを新たに被覆することができる。

第6図に例として挙げたイオンについて感応性隔膜の組成が次掲の表に記載してある。これらの隔膜組成は典型的イオン選択性電極について記載した混合物の場合に相当する。差動隔膜はキャリアが欠けている点で選択性隔膜と相異している。

電解質	キャリア	マトリックス	可量基	濃度
Ca ²⁺	ETH 1001	PVC 66%	oNPOE 33%	---
NH ₄ ⁺	ノナリテン	PVC 66%	TEHP 33%	---
H ⁺	ETH 1907	PVC 66%	oNPOE 33%	---



TEHP = 亜磷酸トリス (2エチルヘキシル)

oNPOE = オルトニトロフェニルオクチルエーテル

第6図では上述した本発明センサの応答曲線がカルシウムイオンについてのものが部分図(I)に、アンモニウムイオンについてのものが部分図(II)に、そして陽子についてのものが部分図(III)に挙げられている。部分図I、IIの応答曲線は塩化物塩の水溶液にあてはまり、陽子センサの応答挙動は磷酸ナトリウム緩衝液500mM(充填した測定点)と50mM(未充填測定点)とについて記載したものである。部分図(IV)に応答時間とセンサの直線性範囲で求めた勾配がまとめられている。

産業上の適用可能性

本発明によるセンサは、医療技術、化学分析技術、環境保護等の分野で各種の測定に利用することができる。

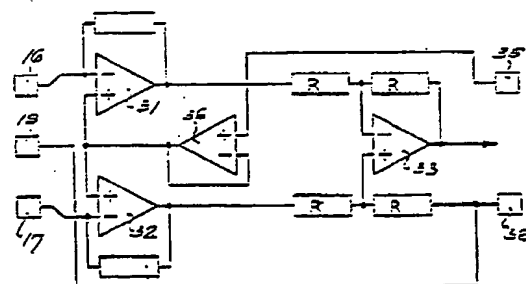
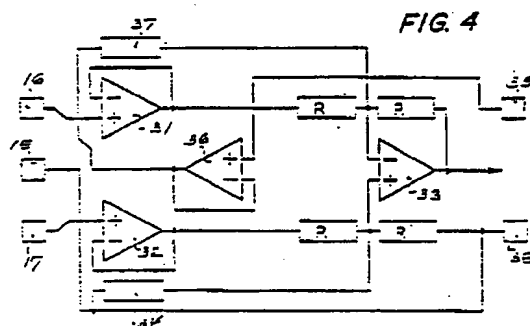
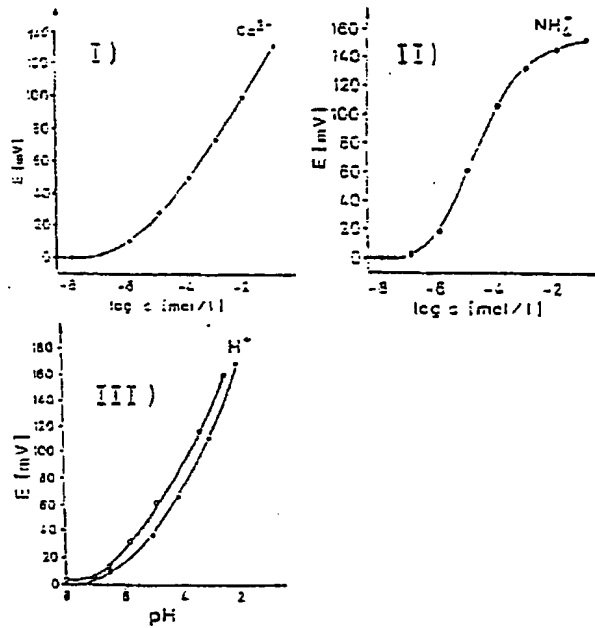


FIG. 5



IV)			
選択性	H ⁺	Ca ²⁺	NH ₄ ⁺
勾配 [mV/デカ]	42	28	49
応答時間 [sec]	<10	<10	<10

FIG. 6

FIG. 6

国際調査報告

International Application No. PCT/DE89/00525

1. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.5 G01N 27/00

2. FIELD OF SEARCH

Int.Cl.5 G01N

3. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Document	Date	Relevant to Claim No.
A	EP.A. 0174712 (P.N. KEMBER)	19 March 1986	1
A	US.A. 4505799 (R.D. BAXTER)	19 March 1985	1
A	US.A. 4449011 (J. KRATOCHVIL)	15 May 1984	1
A	EP.A. 0012035 (G.J. PACE)	11 June 1980	1
A	EP.A. 0193251 (A. SERRALDI)	3 September 1986	1
A	EP.A. 0181206 (A. SERRALDI)	14 May 1986	1
A	DE.A. 3430941 (T.K. MARGIZUMI)	14 March 1985	1
A	DE.A. 3330975 (M. KLEIN)	21 March 1985	1

IV. CERTIFICATION

Date of the Report: 10.11.89

Date of the Report: 30 November 1989 (30.11.89)

European Patent Office

国際調査報告

DE 890525
SA 30439

This report is the result of a search conducted by the European Patent Office in accordance with the provisions of the European Patent Convention (EPC) and the European Patent Act (EPA). The search was conducted in the fields of chemistry and physics.

Patent document No. or serial No.	Publication date	Patent (s) (document)	Publication date
EP-A- 0174712	19-03-86	JP-A- 60263446	26-12-85
US-A- 4505799	19-03-85	CA-A- 3210067	18-08-88
		EP-A- 0149330	24-07-85
		JP-A- 60200154	09-10-85
US-A- 4449011	15-05-84	JP-A- 58129244	02-08-83
EP-A- 0012035	11-06-80	US-A- 4225410	30-09-80
		CA-A- 1136701	30-11-82
EP-A- 0193251	03-09-86	GB-A- 2096625	20-10-82
		EP-A- 0063455	27-10-82
		US-A- 4502538	05-03-85
		US-A- 4567006	28-01-86
EP-A- 0193208	14-05-86	GB-A- 2156804	14-05-86
		JP-A- 61116652	05-06-86
		US-A- 4657658	14-04-87
DE-A- 3430941	14-03-85	JP-A- 60049255	18-03-85
		JP-A- 60050447	20-03-85
DE-A- 3330975	21-03-85	None	

For more details see the text: see Official Journal of the European Patent Office, No. (2):

第1頁の続き

⑦発 明 者 ブロイヒル クリストフ

ドイツ連邦共和国 8000 ミュンヘン 83 ロートケツプヘンシュ
トラーセ 89アー